

Rec'd JPTO 16 DEC 2004 #2

PCT/JP03/07657

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

17.06.03

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日  
Date of Application: 2 0 0 2 年 6 月 1 8 日

出 願 番 号  
Application Number: 特 願 2 0 0 2 - 1 7 6 6 5 3

[ST. 10/C]: [ J P 2 0 0 2 - 1 7 6 6 5 3 ]

出 願 人  
Applicant(s): 株式会社トクヤマ

REC'D 22 AUG 2003

WIPO PCT

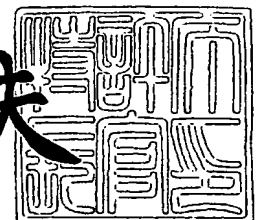
**PRIORITY DOCUMENT**  
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH  
RULE 17.1(a) OR (b)

**CERTIFIED COPY OF  
PRIORITY DOCUMENT**

2 0 0 3 年 8 月 7 日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

今 井 康 夫



【書類名】 特許願

【整理番号】 TTP0206181

【提出日】 平成14年 6月18日

【あて先】 特許庁長官 及川 耕造 殿

【発明者】

    【住所又は居所】 山口県徳山市御影町 1-1 株式会社トクヤマ内

    【氏名】 中村 靖夫

【発明者】

    【住所又は居所】 山口県徳山市御影町 1-1 株式会社トクヤマ内

    【氏名】 若松 智

【特許出願人】

    【識別番号】 000003182

    【氏名又は名称】 株式会社トクヤマ

    【代表者】 中原 茂明

    【連絡先】 東京都渋谷区渋谷 3丁目 3番 1号 株式会社トクヤマ  
知的財産部 電話 03-3499-8946

【手数料の表示】

    【予納台帳番号】 003584

    【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

    【物件名】 明細書 1

    【物件名】 図面 1

    【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 シリコン製造用反応装置

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 シリコンの融点以上に加熱可能な筒状容器と該筒状容器内にシリコン析出用原料ガスを供給する原料ガス供給管とを備えた反応装置において、上記筒状容器の内面が横断面視で扁平形状を成していることを特徴とするシリコン製造用反応装置。

【請求項 2】 該扁平形状の短径 (SD) に対する長径 (LD) の比 (LD/SD) が 1.5 以上である請求項 1 記載のシリコン製造用反応装置。

【請求項 3】 該扁平形状の短径 (SD) が 0.1 m 以下である請求項 1 又は 2 記載のシリコン製造用反応装置。

【請求項 4】 上記筒状容器が高周波により加熱可能な材質よりなり、該筒状容器の周囲に高周波発生用コイルを設けて加熱可能とした請求項 1～3 の何れかに記載のシリコン製造用反応装置。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、シリコン製造用の新規な反応装置に関する。詳しくは、シリコンを長期間連続して製造する反応装置をスケールアップする場合において、原料ガスの反応率を高めることができ、かつ、副生成物の生成を抑制することによって、シリコンの収率を高く維持し、生産効率を向上させたシリコン製造用反応装置を提供する。

【0002】

【従来の技術】

従来、半導体或いは太陽光発電用電池の原料として使用されるシリコンを製造する方法は種々知られており、そのうちのいくつかは既に工業的に実施されている。

【0003】

例えばその一つはシーメンス法と呼ばれる方法であり、通電によりシリコンの

析出温度に加熱したシリコン棒をベルジャー内部に配置し、ここにトリクロロシラン ( $\text{SiHCl}_3$ 、以下TCSという) やモノシラン ( $\text{SiH}_4$ ) を、水素等の還元性ガスと共に接触させてシリコンを析出させる方法である。

#### 【0004】

この方法は高純度なシリコンが得られることが特徴であり、最も一般的な方法として実施されているが、析出がバッチ式であるため、種となるシリコン棒の設置、シリコン棒の通電加熱、析出、冷却、取り出し、ベルジャーの洗浄、等の極めて煩雑な手順を行わなければならないという問題点がある。

#### 【0005】

上記問題に対して、長期間に亘ってシリコンを連続して安定に製造できる反応装置として、シリコンの融点以上に加熱可能である筒状容器内に、シリコン析出用原料ガスを供給するとともに、この筒状容器を加熱してシリコンを析出せしめ、析出したシリコンを筒状容器の下端より連続的に溶融して落下せしめて回収するシリコン製造用の反応装置が提案されている（特開2002-29726号公報）。

#### 【0006】

上記反応装置は従来のシーメンス法の種々の問題点を解決し、連続的にシリコンを製造することが可能であるが、筒状容器内面が横断面視で円状、正多角形状等の形状を成す場合、該反応装置をスケールアップする際、原料ガスの反応率が低下し、また、シリコンの微粉、シラン化合物の低分子量ポリマー等の副生成物が生成し易くなり、シリコンの収率も低下する傾向にあり、改善が望まれていた。

#### 【0007】

##### 【発明が解決しようとする課題】

従って、本発明の目的は、シリコン析出用原料ガスを加熱された筒状容器内に供給して、筒状容器内面にシリコンを析出させ、これを溶融させてシリコンを連続的に製造する装置において、該装置をスケールアップした際に課題となる原料ガスの反応率の低下、および副生成物の生成を改善し、生産効率が大幅に向上したシリコン製造用反応装置を提供することにある。

**【0008】****【課題を解決するための手段】**

本発明者らは、上記課題を解決すべく鋭意研究を重ねた。その結果、前記装置において、上記課題の原因が、筒状容器内面の横断面視の形状に起因するという知見を得た。即ち、筒状容器内面の横断面視の形状が円状、正多角形状等である反応装置をスケールアップすると、筒状容器の加熱された内面から大きく離れた空間が存在し、原料ガスの反応率の低下、副生成物が生成し易くなる等の問題が生じる。かかる知見に基づき、検討を重ねた結果、筒状容器内面の横断面視の形状を扁平形状とすることにより、上記空間の存在を少なくし、前記課題が全て解決し得ることを見出し、本発明を完成するに至った。

**【0009】**

即ち、本発明は、シリコンの融点以上に加熱可能な筒状容器と該筒状容器内にシリコン析出用原料ガスを供給する原料ガス供給管とを備えた、シリコンを製造するための反応装置において、上記筒状容器の内面が横断面視で扁平形状を成していることを特徴とするシリコン製造用反応装置である。

**【0010】****【発明の実施の形態】**

以下、本発明をその代表的な実施形態を示す添付図面に従って説明するが、本発明はこれらの添付図面に一概に限定されるものではない。

**【0011】**

図1は、本発明のシリコン製造用反応装置の基本的な態様の一部を示す概略図であり、図2は、本発明のシリコン製造用反応装置の代表的な実用態様を示す概略図である（図1、図2とも該反応装置を縦断面視した形状の図である）。また、図3～図5は、本発明のシリコン製造用装置の筒状容器内面を横断面視したときの代表的な図である。

**【0012】**

本発明のシリコン製造用反応装置において、筒状容器1は、その空間部にシリコン原料ガスを供給し、加熱された内面でシリコンを析出・溶融せしめ、下端の開口部よりこれを落下せしめる構造を有する。

## 【0013】

そして、上記筒状容器1は、図3～図5に示すような横断面視の形状が扁平形状をしていることが重要である。

## 【0014】

即ち、本発明のシリコン製造用反応装置は、筒状容器内面の横断面視の形状を扁平形状とすることにより、筒状容器の加熱された内面から大きく離れた空間を少なくし、原料ガスの反応率を高め、かつ、副生成物の生成を抑制し、シリコンの生産効率を大幅に向上することができる。

## 【0015】

本発明において、筒状容器内面の横断面視の形状が扁平形状をとることによって、同一表面積を有する筒状容器内面の該形状が円状、正多角形状等のものと比較すると、筒状容器の加熱された内面から大きく離れた空間が少なくなるため、原料ガスが筒状容器内面に接触する確率を高くすることができ、原料ガスの反応率を高めることができる。更に、原料ガスを筒状容器内面に接触し易くした結果、筒状容器内部の原料ガスの温度を全体的に十分に高くすることができ、副生成物が生成し易い温度領域を狭めることが可能となり、シリコンの収率も高めることができる。

## 【0016】

ここで原料ガスの反応率とは、筒状容器内に供給した原料ガスが該容器から排出されるまでの間に何らかの物質に転化した割合で定義される。またシリコンの収率とは、上記の反応して何らかの物質に転化した原料ガスのうち、シリコンへ転化したものの割合で定義される。

## 【0017】

また、同一のガス供給量で反応を実施する場合、筒状容器内面の横断面視の形状が扁平形状のものは、原料ガスの流速が速まり、筒状容器内に原料ガスが滞在する時間が短くなるが、後述する原料ガスの滞在時間内においては、原料ガスの滞在時間が短くなっても、原料ガスの反応率が低下しない。これは即ち、本発明のシリコン製造用反応装置においては、従来のシーメンス法と比較して、シリコンの析出を高い析出表面温度で実施することができ、かつ、原料ガスも十分に昇

温されて活性化されるため、原料ガスが筒状容器内面と接触した際に、極めて短時間でシリコンへ転化する効果が発揮されるためであると考えられる。

#### 【0018】

また、筒状容器内面の横断面視の形状が扁平形状であることによる効果を、同一容積を有する筒状容器内面の該形状が円状、正多角形状等のものと比較すると、同一のガス供給量で反応を実施する場合には、原料ガスの筒状容器内の滞在時間は同じになるが、ガス供給量あたりのシリコンの析出が可能な筒状容器内面の表面積を大きくすることができるため、原料ガスの反応率を高めることができ、同一規模の反応装置でも効率良く生産性を向上させることができる。

#### 【0019】

筒状容器内面の横断面視の形状を扁平形状としてスケールアップをすることにより、上述した効果に加え、筒状容器の上下両端部での輻射熱損失を効果的に防止し、加熱エネルギーを大幅に節減しうる効果も得ることができる。すなわち、本発明のシリコン製造用反応装置を用いると、シリコンの製造に關与する筒状容器内面を互いに近接させて開口部の面積を小さくすることができるために、外部への輻射損失が大幅に低減すると共に筒状容器上下両端部の温度低下も効果的に抑制し、少ない加熱エネルギーで反応部の均質な温度分布を得ることができる。この効果は、輻射エネルギーが大きくなる1000℃以上の高温条件で実施する本発明の実施においては特に有効である。

#### 【0020】

本発明のシリコン製造用反応装置において、上記筒状容器内面の横断面視における扁平形状の短径(SD)に対する長径(LD)の比(LD/SD)が1.5以上であることが好ましい。LD/SDの比が1.5未満の場合は、原料ガスの反応率の改良効果が顕著に発揮されない傾向にある。一方、LD/SDの上限は、特に制限されるものではないが、反応装置の製作上、LD/SD=1000以下であることが好ましい。上記効果と反応装置の製作を勘案するとLD/SDは、2~400が好ましく、更に3~300であることが好ましい。

#### 【0021】

また、該扁平形状の短径(SD)は、0.1m以下であることが好ましい。S

Dが0.1mを超える場合は、原料ガスの反応率の改良効果が顕著に発揮されない傾向にある。一方、SDの下限は、特に制限されるものではないが、反応装置の製作上、SDが0.005m以上であることが好ましい。上記効果と反応装置の製作を勘案するとSDは0.01～0.08mが好ましく、更に0.01～0.06mであることが好ましい。

#### 【0022】

上記のLD、およびSDの関係において、シリコンを工業的に生産するためには、該扁平形状の長径(LD)は、0.15m以上であることが好ましい。一方、LDの上限は、特に制限されるものではないが、反応装置の製作上、LDが5m以下であることが好ましい。すなわち、シリコンの生産量と反応装置の製作を勘案するとLDは0.16～4mが好ましく、更に0.18～3mであることが好ましい。

#### 【0023】

なお、上記扁平形状のLD/SDの比、SD、LD値は、筒状容器の縦断面視における形状が後述するように変化する態様をとる場合、原料ガスが接触可能な領域、即ち、原料供給管5の原料ガスの吹き出し口6と同じ位置から、下端の開口部2までの筒状容器内面における平均値で示すものである。つまり、図1の距離I(反応部の長さ)における筒状容器内面の領域において、その平均値を示すものである。

#### 【0024】

本発明のシリコン製造用反応装置において、筒状容器の縦断面視における形状は、特に制限されるものではないが、製作を容易にするために、図1に示すような直胴状にすることもできるし、開口部2に向かって徐々に径が減少するように絞り部を形成した態様等をとることができる。

#### 【0025】

また、筒状容器1における開口部は、その周縁が水平となるように構成する態様でも問題なく粒子状のシリコンを得るが、周縁が傾斜するように構成する態様、周縁を波状に構成する態様とすることもできる。

#### 【0026】



更に、上述した開口部周縁の形状において、シリコンを融液として回収する場合は、溶融シリコンが筒状容器より落下する時の液切れを良くするため、先端部に向かって肉厚が次第に薄くなる刃物状にすることがより好ましい態様である。

#### 【0027】

本発明において使用される筒状容器1は、シリコンの融点以上に加熱され、その内部は各種シラン類やシリコン溶融液に接触するため、これらの温度条件や接触物に対して十分に耐える材質を選択することが長期間の安定したシリコンの製造を行う上で望ましい。

#### 【0028】

かかる材質としては、例えば、グラファイト、熱分解炭素等の炭素材料、炭化ケイ素 ( $\text{SiC}$ )、窒化ケイ素 ( $\text{Si}_3\text{N}_4$ )、および窒化ホウ素 ( $\text{BN}$ )、窒化アルミ ( $\text{AlN}$ ) 等のセラミックス材料の、単独材料または複合材料が挙げられる。

#### 【0029】

これら材質のうち、炭素材料を基材としてする場合、析出するシリコンの汚染を防ぐために、少なくともシリコン溶融液と接触する部分を熱分解炭素、 $\text{Si}_3\text{N}_4$ 、 $\text{SiC}$ を被覆することが好ましい。

#### 【0030】

本発明のシリコン製造用反応装置において、加熱手段3は、筒状容器の内面をシリコンの融点以上に加熱することができるものであれば、公知の手段が特に制限なく採用される。ここで、シリコンの融点は $1410\sim 1430^\circ\text{C}$ の範囲にあると考えられている。具体的な加熱手段は、外部からのエネルギーにより筒状内面を加熱する手段が挙げられ、より具体的には、高周波による加熱方法、電熱線を用いる加熱手段、赤外線を用いる加熱手段等が挙げられる。

#### 【0031】

これらの方法のうち、高周波を用いる加熱方法は、高周波を放出する加熱コイルの形状をシンプルにしながら、筒状容器を均質的な温度に加熱することが容易にできるため、好適に使用される。

#### 【0032】

本発明の加熱手段の制御方法としては、筒状容器内面全てを同一温度に制御しても良いし、筒状容器を上部、下部の2段、またはそれ以上の複数段に分けて、各段の温度制御を行うこともできる。また、上記の温度制御は、筒状容器の加熱手段全てを同一のもので行っても良いし、複数段に各加熱手段を設けて制御することもできる。

#### 【0033】

また、加熱のエネルギー効率を向上させるために、筒状容器と加熱手段との間に断熱材を挿入することも可能である。

#### 【0034】

本発明のシリコン製造用反応装置において、原料ガス供給管5は、シリコンの融点以上に加熱された筒状容器1の内面によって囲まれた空間4に原料ガスを直接供給するためのものであり、かつ、空間4に下方に向かって開口するように設けられる。そして、該原料ガス供給管5の原料ガス吹き出し口6の位置は、筒状容器内面において融点以上に加熱される最上部の位置と同じか、それよりも下方に設けられる

なお、原料ガス供給管5の開口方向を示す「下方」とは、鉛直方向のみに限定されず、生成したシリコンがガス供給管に再度接触しないように開口する態様が全て含まれる。しかし、最も好適な態様は、鉛直方向に供給管を設ける態様である。

#### 【0035】

本発明のシリコン製造用反応装置において、上記原料ガス供給管の形状は、特に限定されるものではなく、円筒状のものであってもよいし、筒状容器と同様に横断面視における形状が扁平形状のものであってもよく、これらのものを筒状容器内面の横断面視における扁平形状の長径方向に複数本並列に配置して使用することもできる。中でも、原料ガスを筒状容器内により均一に分散させるためには、原料ガス供給管の形状は、円筒状のものを上記筒状形状の扁平形状の長径方向に複数本並列に配置させるか、または、筒状容器と同様に横断面視における形状が扁平形状であって、上記筒状容器内面の扁平形状と原料ガス供給管の扁平形状の長径方向が同一であることが好ましい。

## 【0036】

また、原料ガス供給管5は、該供給管の熱劣化を防止し、後に詳述する原料ガスである各種シラン類が分解するのを防ぐため、該供給管を冷却する冷却手段を備えることが好ましい。冷却手段7の具体的態様は、特に制限されず、図1に示すような、原料ガス供給管の内部に水、熱媒油等の冷媒液体をD1から供給し、D2より排出するようにした流路を設けて冷却する液体ジャケット方式、図示されてはいないが、原料ガス供給管に多重環ノズルを設けることによる空冷ジャケット方式等が挙げられる。

## 【0037】

原料ガス供給管の冷却温度は、供給管を構成する材質が著しく劣化しない程度に冷却すればよく、一般には、供給する原料ガスの自己分解温度未満に設定してやればよい。

## 【0038】

また、原料ガス供給管の材質としては、筒状容器と同様の材質の他、鉄およびステンレス鋼等も使用することができる。

## 【0039】

本発明のシリコン製造用反応装置の他の構造は、公知の構造、例えば、特開2002-29726号公報などに記載された構造が特に制限無く採用される。

## 【0040】

具体的には、図2に示すように筒状容器は、排ガスGの排ガス排出管9を接続した密閉容器10中に設けられ、外気と遮断することにより、純度の高いシリコンを得ることができ、さらに排ガスを効率よく回収することができる。また、上記密閉容器10は、下部に冷却室を設け、この冷却室には、筒状容器から落下したシリコン15を回収する室が形成され、上記排ガス排出管9の他、冷却媒体をF1からF2、F3からF4に流通させる冷却ジャケット13、該ジャケットにより冷却される冷却空間14、得られたシリコン15を冷却する冷却ガスHを供給する冷却ガス供給管12を設けることもできる。また、冷却空間14中に仕切り板16を設け、生成したシリコン15を取出口17から取り出す態様にすることもできる。

## 【0041】

前記筒状容器1と原料ガス供給管5の空間において、供給されたシリコン原料が、シリコンが固体状で析出する低温領域となる部分でのシリコンの析出・成長が起こるのを防止するため、該低温領域にシールガスを供給（シールガスC、シールガス供給管8）することが好ましい。このシールガスは、シリコンの製造に悪影響を与えないガスが好適であり、具体的にはアルゴン、ヘリウム等の不活性ガスや水素が好適であり、排ガスを循環して使用する場合には、特に水素が好適である。また、筒状容器1と密閉容器10の空間においても、シリコンの析出を防ぐため、シールガス供給管11から、上記シールガスを供給することが好ましい。

## 【0042】

更に、シールガスの効果を高めるために、シリコンをエッチングし得るガス、例えば塩化水素などをシールガスに適宜混合することもより好ましい態様である。

## 【0043】

本発明のシリコン製造用反応装置において、原料ガス供給管より供給される原料ガスは、公知のシリコン原料ガスとして使用される各種シラン類が挙げられる。具体的には、トリクロロシラン（TCS）、四塩化ケイ素（STC）、モノシラン、ジクロロシランなどが挙げられる。中でもモノシランやTCSが工業的に高純度のものを大量に入手可能であるために好ましい。また、上記原料ガスは希釈して使用することもでき、この希釈ガスは、上記シールガスと同様、シリコンの製造に悪影響を与えないガスが好適である。特に未反応の原料ガスを循環して使用する場合には、該希釈ガスは水素が好ましく、原料ガスの希釈する割合は、原料ガスが1～30モル%、好ましくは3～20モル%の割合にすることが好ましい。この希釈ガスを使用する場合は、予め原料ガスを希釈して、上記原料ガス供給管から供給してもよいし、原料ガスとは別に希釈ガスの供給管を設けて供給することもできる。

## 【0044】

本発明のシリコン製造用反応装置において、シリコンを析出・溶融させる方法

は、特に制限されるものではないが、筒状容器内面をシリコンの融点以上の温度に設定して、シリコン融液を連続的に落下させる方法、または、筒状容器内面をシリコンが析出可能な温度に設定し、一度シリコンを析出させた後、筒状容器内面をシリコンの融点以上に設定し、析出したシリコンを溶融落下させる方法等を用いることができる。

#### 【0045】

本発明のシリコン製造用反応装置において、筒状容器内面でシリコンを析出・溶融させる温度は、使用する原料ガスの組成や、シリコン溶融・析出方法等により適宜決定してやればよい。中でも高純度の安定したシリコンを得るためには、原料ガスにTCSを使用して、筒状容器内面を1300℃～1700℃の温度でシリコンの析出・溶融を行うことが好ましい。本発明のシリコン製造用反応装置において、筒状容器内面を1300℃～1700℃という高温でシリコンの析出・溶融を行うことにより、該筒状容器内面の横断面視の形状を扁平形状にすることの効果が顕著に発揮される。

#### 【0046】

本発明のシリコン製造用反応装置において、原料ガスを反応させる圧力は、工業的な生産が可能であり、安定した生産を確保できる範囲であれば、特に制限されるものでなく、常圧から3MPaG、好ましくは常圧～1MPaGである。

#### 【0047】

本発明のシリコン製造用反応装置において、各種ガスの滞在時間は、一定容量の筒状容器に対して、反応時の温度、圧力等の条件によって適宜調整してやればよいが、平均的な滞在時間は0.001～60秒、好ましくは0.001～10秒、更に好ましくは0.001～1秒である。この範囲に設定することにより、十分に経済的な原料ガスの反応率を得ることが可能となる。

#### 【0048】

##### 【発明の効果】

以上の説明より理解されるように、本発明のシリコン製造用反応装置は、シリコンを長期間連続して製造する反応装置をスケールアップする場合において、原料ガスの反応率を高めることができ、かつ、副生成物の生成を抑制することによ

って、シリコンの収率を高く維持し、生産効率を大幅に向上させた。更に、筒状容器の両端部での輻射熱損失を効果的に防止できた。

#### 【0049】

##### 【実施例】

以下、本発明を詳細に説明するための実施例を挙げて説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

#### 【0050】

##### 実施例 1

筒状容器 1 は、グラファイト製で内面が横断面視で図 4 に示すような扁平形状であって、その SD が 0.1 m、LD が 0.16 m、肉厚が 15 mm、長さが 1.0 m 直胴状であり、下部に開口部 2 を有するものを使用した。原料ガス供給管 5 は、ステンレス製で冷却手段 7 として通液可能なジャケット構造を有してなり、原料ガス吹き出し口 6 が 10 mm × 100 mm のスリット状のものを使用した。なお、原料ガス供給管 5 は、原料ガス吹き出し口 6 の中心と長径方向が、上記筒状容器の扁平形状のそれらと一致するようにし、原料ガス吹き出し口 6 の高さが、図 1 の反応部の長さ I が 0.6 m になるように、筒状容器 1 に設置した。また、筒状容器内面の原料ガスが接触可能な部分をシリコンの融点以上に加熱するように、加熱手段 3 としての高周波加熱コイルを、厚み 50 mm の断熱材を介して該筒状容器を取り囲む形状で設置した。また、密閉容器 10 はステンレス製で内径 1 m、長さ 1.5 m ものを使用した。

#### 【0051】

原料ガス供給管 5、密閉容器 10 を通水によって冷却し、シールガス供給管 8、シールガス供給管 11 から水素ガスをそれぞれ  $5 \text{ Nm}^3/\text{H}$  で流通させながら、高周波加熱手段 3 により筒状容器 1 を  $1500^\circ\text{C}$  に加熱した。

#### 【0052】

原料供給管 5 からトリクロロシランと水素の混合ガスを、それぞれ  $35 \text{ kg}/\text{H}$ 、 $100 \text{ Nm}^3/\text{H}$  の速度で供給したところ、シリコンを約  $1.3 \text{ kg}/\text{H}$  で安定的に得ることができた。このときのトリクロロシランの反応率は約 35% であった。また、微粉状シリコンの発生は少量であり、シリコンの収率も向上した。

。この結果を表1にまとめた。

#### 【0053】

##### 実施例2

実施例1において、筒状容器1の内面における横断面視の形状がSDを0.04m、LDを0.2mに変更し、原料供給管5は、原料ガス吹き出し口6を10mm×170mmのスリット状に変更し、これに応じて加熱手段3の高周波加熱コイルの形状も、厚み50mmの断熱材を介して該筒状容器を取り囲む形状に変更した。上記以外は、実施例1と同様の装置を用いながら同様の条件で反応を行った。結果を表1にまとめた。このとき、微粉状シリコンの発生は極めて少なかった。

#### 【0054】

##### 実施例3

実施例2において、筒状容器1の内面における横断面視の形状がLDを1mに変更し、またこれに応じて加熱手段3の高周波加熱コイルの形状も相応に変更した。さらに原料ガス吹き出し口6も10mm×970mmのスリット状に変更した。密閉容器10も内面の横断面視が図4に示すような扁平形状で、その短径が0.5m、長径が3mとなるように変更し、該扁平形状の向きは、上記筒状容器の扁平形状と同じにした。

#### 【0055】

シールガス供給管8、シールガス供給管11から水素ガスをそれぞれ25Nm<sup>3</sup>/Hで流通させ、原料供給管5からはトリクロロシランと水素の混合ガスを、それぞれ175kg/H、500Nm<sup>3</sup>/Hの速度で供給して反応を行った。結果を表1にまとめた。このとき、微粉状シリコンの発生は極めて少なかった。

#### 【0056】

##### 比較例1

筒状容器1を内径0.15mの円状で反応部の長さIを0.6mとし、原料ガス吹き出し口も40mmの円状とした。またこれに応じて加熱手段3としての高周波加熱コイルの形状も厚み50mmの断熱材を介して該筒状容器を取り囲む形状に変更した。上記以外は、実施例1と同様の装置を用いながら同様の条件で反

応を行った。結果を表1にまとめた。このとき、微粉状シリコンの発生は、やや多く見られた。

### 【0057】

#### 比較例2

筒状容器1を内径0.23mの円状で反応部の長さIを0.6mとし、原料ガス吹き出し口も60mmの円状とした。またこれに応じて加熱手段3としての高周波加熱コイルの形状も厚み50mmの断熱材を介して該筒状容器を取り囲む形状に変更した。上記以外は、実施例3と同様の装置を用いながら同様の条件で反応を行った。結果を表1にまとめた。このとき、微粉状シリコンの発生は、やや多く見られた。

### 【0058】

【表1】

表1

	SD [m]	LD [m]	LD/S D	反応部 の長さ I [m]	反応表 面積 * [m <sup>2</sup> ]	反応 容積 ** [m <sup>3</sup> ]	ガス 合計の 供給量 *** [Nm <sup>3</sup> /H]	ガス 滞在 時間 [S]	TCS 反 応率 [%]	シリコンの 収率 **** [mol%]	シリコン 生産量 [kg/H]
実施例 1	0.10	0.16	1.6	0.6	0.26	0.008	106	0.28	35	51	0.9
実施例 2	0.04	0.2	5	0.6	0.27	0.005	106	0.16	55	52	2.1
実施例 3	0.04	1.00	25	0.6	1.23	0.024	529	0.16	53	53	10
比較例 1	0.15	0.15	1	0.6	0.28	0.011	106	0.36	22	48	0.8
比較例 2	0.23	0.23	1	0.6	0.43	0.025	529	0.17	20	48	0.7

\* : 反応部の長さIにおける筒状容器内面の表面積

\*\* : 反応部の長さIにおける筒状容器の容積

\*\*\* : TCSと水素の合計の供給量

\*\*\*\* : 反応したTCSのうち、シリコンへ転化した割合

表1に示す通り、実施例1、2と比較例1を比較すると、シリコンの生成に関与する筒状容器内面の表面積が同程度の場合には、実施例1、2は、原料ガスの滞在時間が短いにもかかわらず、原料ガスの反応率がよく、加えて好ましくない微粉の発生量も低減でき、シリコンの収率がよいことがわかる。



また、実施例 3 と比較例 2 を比較すると、容積が同程度であって、ガスの滞留時間を同程度にした場合でも、実施例 3 は、原料ガスの反応率がよく、シリコンの生産量を大幅に向上させることができた。

本発明のシリコン製造用反応装置を用いると、反応器をスケールアップした場合においても、原料ガスの高い反応率を維持し、シリコンの生産量をきわめて効率よく増大することができた。

#### 【0059】

##### 【図面の簡単な説明】

【図 1】 本発明のシリコン製造用反応装置の基本的な態様の一部を示す概略図であって、該反応装置を縦断面視した形状の図を示したものである。

【図 2】 本発明のシリコン製造用反応装置の代表的な実用態様を示す概略図であって、該反応装置を縦断面視した形状の図を示したものである。

【図 3】 本発明のシリコン製造用装置の筒状容器を横断面視したときの代表的な図を示したものである。

【図 4】 本発明のシリコン製造用装置の筒状容器を横断面視したときの代表的な図を示したものである。

【図 5】 本発明のシリコン製造用装置の筒状容器を横断面視したときの代表的な図を示したものである。

##### 【符号の説明】

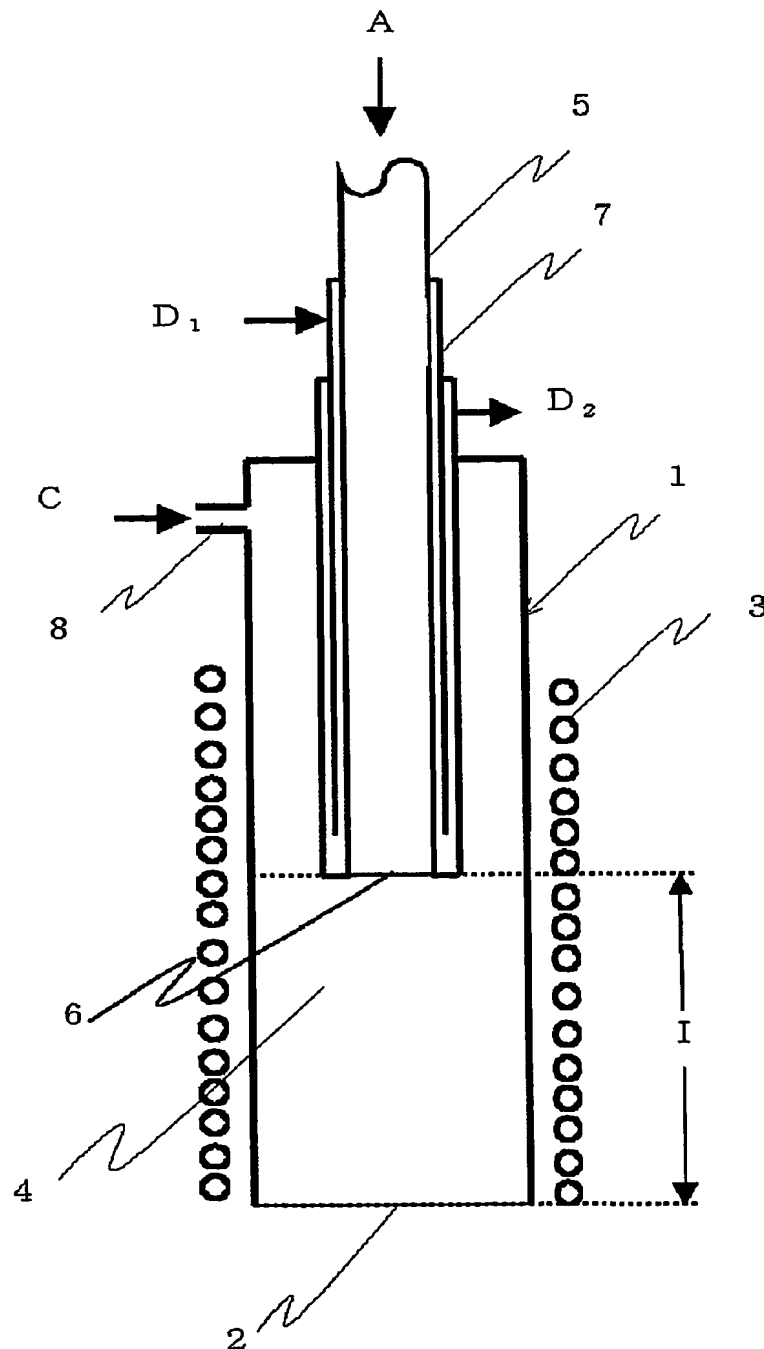
- 1 筒状容器
- 2 開口部
- 3 加熱手段
- 4 空間
- 5 原料ガス供給管
- 6 原料ガス吹き出し口
- 7 冷却手段
- 8 シールガス供給管
- 9 排ガス排出管
- 10 密閉容器

- 1 1 シールガス供給管
- 1 2 冷却ガス供給管
- 1 3 冷却ジャケット
- 1 4 密閉容器の冷却空間
- 1 5 シリコン
- 1 6 仕切り板
- 1 7 シリコン取出口
- A 原料ガス
- C シールガス
- I 反応部の長さ

【書類名】 図面

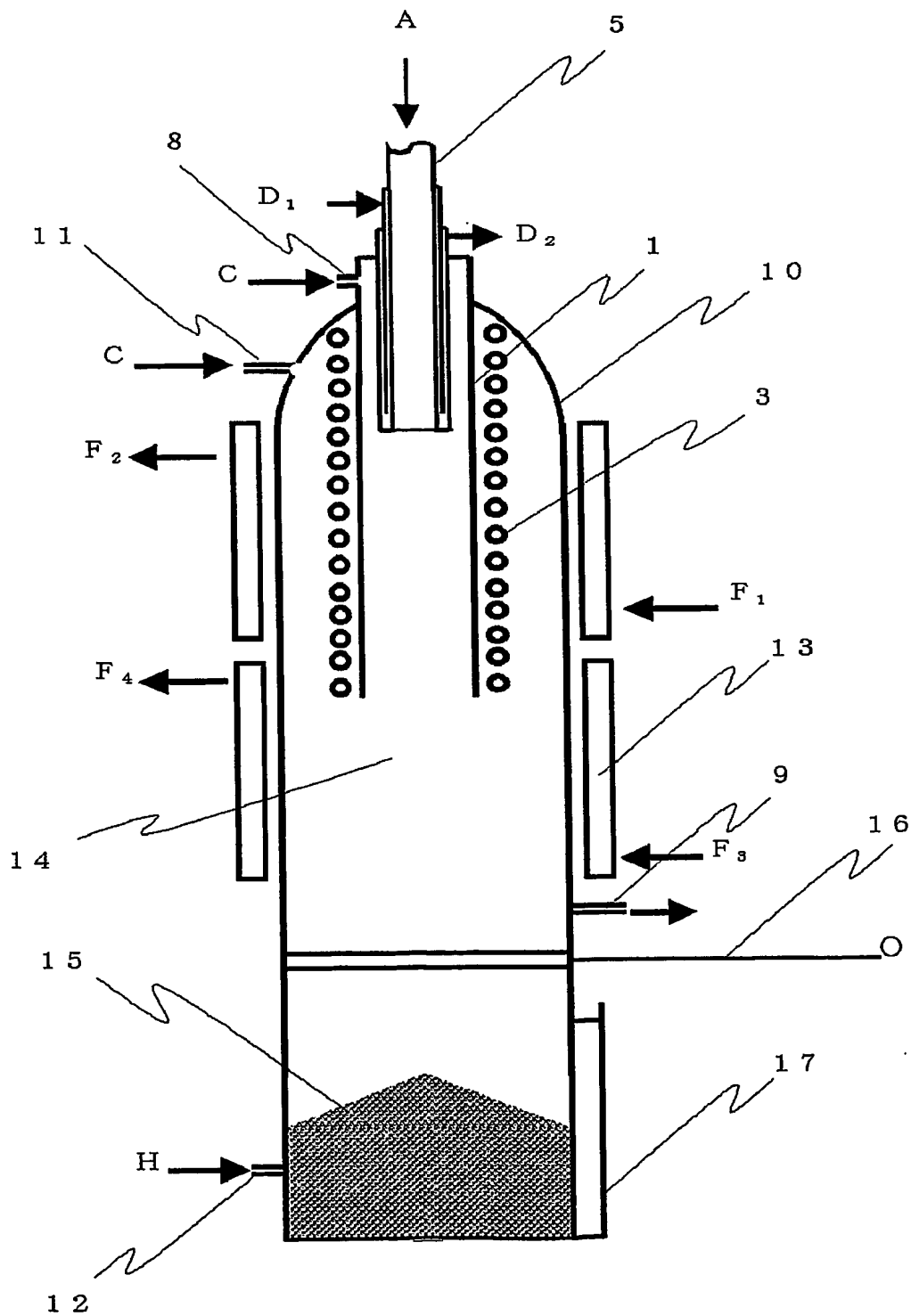
【図 1】

図 1



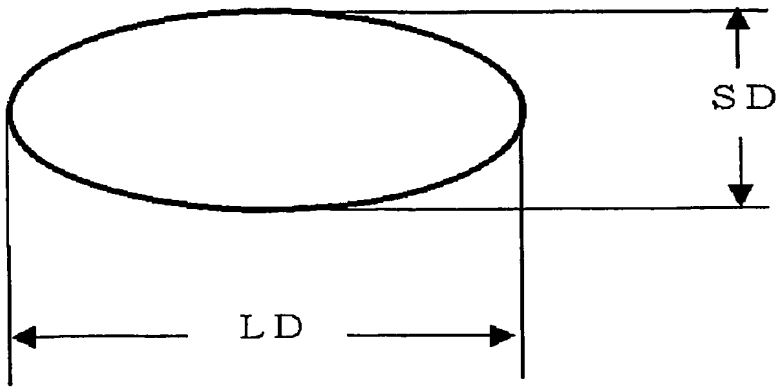
【図 2】

図 2



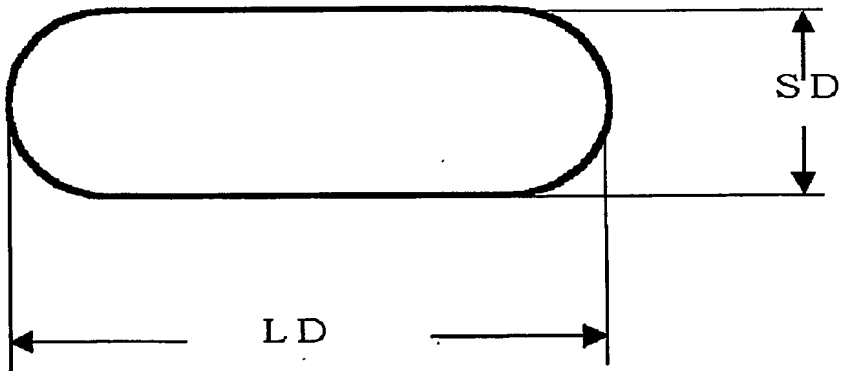
【図 3】

図 3



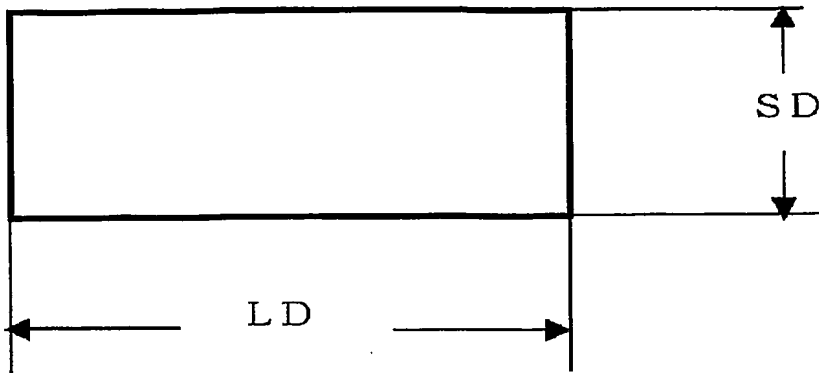
【図 4】

図 4



【図 5】

図 5



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 シリコン析出用原料ガスを加熱された筒状容器内に供給して、筒状容器内面にシリコンを析出させ、これを溶融させてシリコンを連続的に製造する装置において、該装置をスケールアップした際に課題となる原料ガスの反応率の低下、および副生成物の生成を改善し、生産効率を大幅に改善したシリコン製造用反応装置に関する。

【解決手段】 シリコンの融点以上に加熱可能な筒状容器と該筒状容器内にシリコン析出用原料ガスを供給する原料ガス供給管とを備えた反応装置において、上記筒状容器の内面が横断面視で扁平形状を成していることを特徴とするシリコン製造用反応装置。

【選択図】 なし

特願 2002-176653

出願人履歴情報

識別番号

[000003182]

- |          |               |
|----------|---------------|
| 1. 変更年月日 | 1994年 4月 6日   |
| [変更理由]   | 名称変更          |
| 住 所      | 山口県徳山市御影町1番1号 |
| 氏 名      | 株式会社トクヤマ      |
|          |               |
| 2. 変更年月日 | 2003年 4月23日   |
| [変更理由]   | 住所変更          |
| 住 所      | 山口県周南市御影町1番1号 |
| 氏 名      | 株式会社トクヤマ      |